

B6

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2000-154002

(43)Date of publication of application : 06.06.2000

(51)Int.Cl.

C01B 3/50

C10K 3/04

H01M 8/06

(21)Application number : 10-328613

(71)Applicant : TOYOTA MOTOR CORP

(22)Date of filing : 18.11.1998

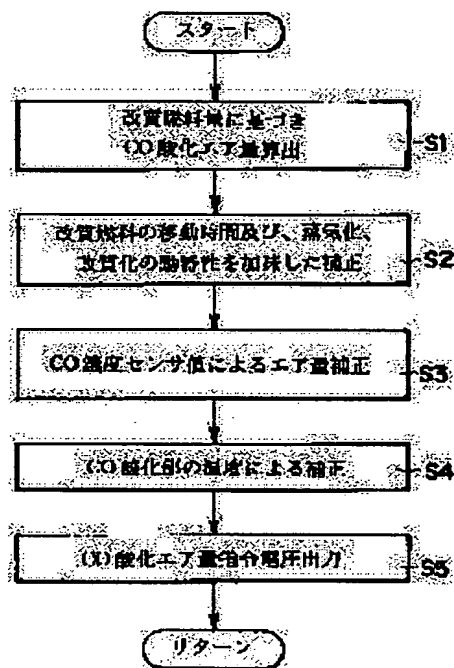
(72)Inventor : EIMIYA KIYOMI  
YAMASHITA KATSUJI  
MAEDA IWAO  
YAMAOKA MASAOKI  
TAKI MASAYOSHI

## (54) APPARATUS FOR REDUCING CONCENTRATION OF CARBON MONOXIDE IN REFORM GAS

## (57)Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To obtain high quality reform gas by adjusting the amount of oxygen to be fed for oxidizing carbon monoxide contained in a reform gas to be appropriate.

**SOLUTION:** In a apparatus for reducing the concentration of carbon monoxide contained in a reforming gas, in which the concentration of carbon monoxide contained in the reforming gas is reduced by feeding oxygen to the reforming gas obtained by reforming reaction and reacting the oxygen with carbon monoxide contained in the reforming gas, a means (step S1) for determining the supplying amount of oxygen for oxidizing carbon monoxide is equipped and determines the amount of oxygen to be fed for oxidizing carbon monoxide contained in the reforming gas, according to the supplying amount of fuel which is fed to the reforming reaction.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's]

decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2000-154002

(P2000-154002A)

(43)公開日 平成12年6月6日(2000.6.6)

(51)Int.Cl.

識別記号

F I

テマコード(参考)

C 0 1 B 3/50

C 0 1 B 3/50

4 G 0 4 0

C 1 0 K 3/04

C 1 0 K 3/04

4 H 0 6 0

H 0 1 M 8/06

H 0 1 M 8/06

G 5 H 0 2 7

審査請求 未請求 請求項の数5 OL (全 8 頁)

(21)出願番号

特願平10-328613

(22)出願日

平成10年11月18日(1998.11.18)

(71)出願人

000003207

トヨタ自動車株式会社

愛知県豊田市トヨタ町1番地

(72)発明者

永宮 清美

愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

(72)発明者

山下 勝司

愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

(74)代理人

100083998

弁理士 渡辺 丈夫

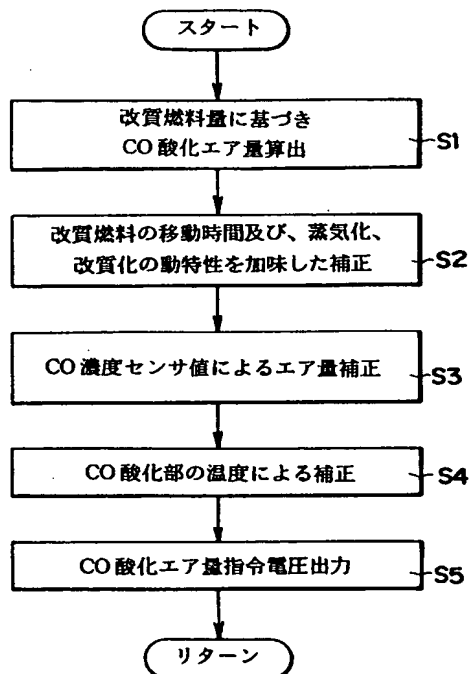
最終頁に続く

(54)【発明の名称】 改質ガス中の一酸化炭素濃度低減装置

(57)【要約】

【課題】 改質ガス中に含まれる一酸化炭素を酸化させた目の酸素供給量を適正化して高品質の改質ガスを得る。

【解決手段】 改質反応によって得た改質ガスに酸素を供給して該改質ガス中の一酸化炭素をその酸素によって酸化させることにより、改質ガスに含まれる一酸化炭素ガスの濃度を低減する改質ガス中の一酸化炭素濃度低減装置において、改質ガス中の一酸化炭素を酸化させるために供給する酸素量を、前記改質反応に供される燃料の供給量に基づいて決定するCO酸化用酸素供給量決定手段(ステップS1)を備えている。



## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 改質反応によって得た改質ガスに酸素を供給して該改質ガス中の一酸化炭素をその酸素によって酸化させることにより、改質ガスに含まれる一酸化炭素ガスの濃度を低減する改質ガス中の一酸化炭素濃度低減装置において、

改質ガス中の一酸化炭素を酸化させるために供給する酸素量を、前記改質反応に供される燃料の供給量に基づいて決定する CO 酸化用酸素供給量決定手段を備えていることを特徴とする改質ガス中の一酸化炭素濃度低減装置。

【請求項 2】 改質ガス中の一酸化炭素を酸化させるために供給する酸素量を、前記燃料の供給から改質ガスの発生までの応答遅れに基づいて補正する応答遅れ基準補正手段を更に備えていることを特徴とする請求項 1 に記載の改質ガス中の一酸化炭素濃度低減装置。

【請求項 3】 改質ガス中の一酸化炭素を酸化させるために供給する酸素量を、前記改質ガス中の一酸化炭素と前記酸素との酸化反応が生じる CO 酸化部から流出する一酸化炭素の濃度に応じて補正する濃度基準補正手段を更に備えていることを特徴とする請求項 1 もしくは 2 に記載の改質ガス中の一酸化炭素濃度低減装置。

【請求項 4】 改質ガス中の一酸化炭素を酸化させるために供給する酸素量を、前記改質ガス中の一酸化炭素と前記酸素との酸化反応が生じる CO 酸化部における温度に基づいて補正する温度基準補正手段を更に備えていることを特徴とする請求項 1 ないし 3 のいずれかに記載の改質ガス中の一酸化炭素濃度低減装置。

【請求項 5】 前記酸素量となるように吐出量が指令値に基づいて設定される酸素供給装置と、前記改質ガス中の一酸化炭素と酸素との酸化反応が生じる CO 酸化部での圧力に関連する量に基づいて前記指令値を補正する指令値補正手段とを更に備えていることを特徴とする請求項 1 ないし 4 のいずれかに記載の改質ガス中の一酸化炭素濃度低減装置。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

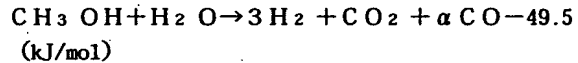
【発明の属する技術分野】 この発明は、メチルアルコールなどの炭化水素および水蒸気などの燃料を改質して得られた改質ガス中の一酸化炭素の濃度を低減するための装置に関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】 この種の改質ガスを使用するシステムとして燃料電池を用いたシステムが知られている。例えばプロトン透過性の電解質膜を使用した燃料電池では、水素ガスを燃料として、これを電気化学的に酸化させ、その際に生じる起電力を外部に取り出すように構成されている。

【0003】 この燃料電池を用いたシステムで使用される改質器は、一例としてメタノールと水蒸気とを改質触

媒に供給し、所定の温度の下での改質反応によって水素を主成分とした改質ガスを得るように構成されている。その改質反応は基本的には、1モルのメタノールと1モルの水とから3モルの水素と1モルの二酸化炭素とを生じる吸熱反応であるが、僅かな量の一酸化炭素が不可避免的に生じる。その反応式は下記のとおりである。



【0004】 改質ガスを燃料電池の燃料ガスとして使用する場合、燃料電池の電極に白金が触媒として用いられているので、燃料ガスに一酸化炭素が含まれていると、白金がその一酸化炭素によって被毒し、劣化してしまう。そのため、改質ガスから可及的に一酸化炭素を除去することが好ましく、例えば特開平 8-329969 号公報に記載された装置では、改質反応を生じさせる改質部と燃料電池との間に、改質ガス中の一酸化炭素ガスを酸化させる酸化部を設け、改質器から燃料電池の到る改質ガスの供給系路における一酸化炭素の濃度を検出し、その濃度が所定値以上になった場合に、その酸化部に供給する空気量を増大させるように構成されている。

## 【0005】

【発明が解決しようとする課題】 上述した従来の装置では、改質ガスに含まれる一酸化炭素が酸化部における酸化触媒で空気中の酸素と反応し、白金に対して無害の二酸化炭素となり、改質ガスから除去される。しかしながら、上記従来の装置では、改質ガス中の一酸化炭素の濃度の上昇に伴って酸化部に対する空気の吹き込み量を増大させるが、その量が一酸化炭素の実際の量に対して必ずしも適正とは言えない場合が生じる可能性がある。

【0006】 すなわち、原理的には、1モルの一酸化炭素と 1/2モルの酸素とが反応して1モルの二酸化炭素が生じるから、上記の酸化部に供給される空気の量が、改質ガス中の一酸化炭素の量に対して不足すれば、未反応の一酸化炭素が燃料電池に供給されて白金触媒が被毒する不都合が生じる。また反対に空気の量が過剰であれば、余剰の酸素が改質ガスと共に燃料電池に供給され、その結果、燃料電池に対する燃料ガスの一部が発電の用に供されずに燃焼してしまう可能性がある。検出された一酸化炭素の濃度に基づいて空気の吹き込み量を単に増大させる上記従来の装置では、このような不都合に対処することができない可能性があった。

【0007】 この発明は、上記の事情に鑑みてなされたものであり、改質ガス中の一酸化炭素を過不足なく除去できる装置を提供することを目的とするものである。

## 【0008】

【課題を解決するための手段およびその作用】 上記の目的を達成するために、請求項 1 の発明は、改質反応によって得た改質ガスに酸素を供給して該改質ガス中の一酸化炭素をその酸素によって酸化させることにより、改質ガスに含まれる一酸化炭素ガスの濃度を低減する改質ガ

ス中の一酸化炭素濃度低減装置において、改質ガス中の一酸化炭素を酸化させるために供給する酸素量を、前記改質反応に供される燃料の供給量に基づいて決定するCO酸化用酸素供給量決定手段を備えていることを特徴とするものである。

【0009】したがって請求項1の発明によれば、改質反応に供される燃料の量の増減に応じて、一酸化炭素の酸化のために供給される酸素の量が増減される。すなわち、一酸化炭素は、改質反応に伴って一定の割合で発生し、また酸素との反応が所定の効率で生じるので、改質燃料の量に応じて、供給酸素量を決定することにより、酸素の量が一酸化炭素の量に適合した量に設定される。

【0010】また、請求項2の発明は、請求項1において、改質ガス中の一酸化炭素を酸化させるために供給する酸素量を、前記燃料の供給から改質ガスの発生までの応答遅れに基づいて補正する応答遅れ基準補正手段を更に備えていることを特徴とするものである。

【0011】したがって請求項2の発明によれば、改質反応の応答遅れが、一酸化炭素の酸化のための酸素供給量に反映されるので、一酸化炭素と酸素との反応が生じる箇所での酸素濃度の過不足が是正される。

【0012】請求項3の発明は、請求項1もしくは2において、改質ガス中の一酸化炭素を酸化させるために供給する酸素量を、前記改質ガス中の一酸化炭素と前記酸素との酸化反応が生じるCO酸化部から流出する一酸化炭素の濃度に応じて補正する濃度基準補正手段を更に備えていることを特徴とするものである。

【0013】したがって請求項3の発明によれば、改質ガス中の一酸化炭素の目標濃度が、酸素供給量に反映されるから、一酸化炭素を酸化させて除去するための酸素の供給量がより正確になる。

【0014】さらに、請求項4の発明は、請求項1ないし3のいずれかにおいて、改質ガス中の一酸化炭素を酸化させるために供給する酸素量を、前記改質ガス中の一酸化炭素と前記酸素との酸化反応が生じるCO酸化部における温度に基づいて補正する温度基準補正手段を更に備えていることを特徴とするものである。

【0015】したがって請求項4の発明によれば、一酸化炭素の酸化が生じるCO酸化部での温度を酸素の供給量に反映させることができ、したがって例えば一酸化炭素の酸化などによる温度上昇が過剰な場合には、酸素の供給量を制限することができるので、CO酸化部の熱劣化などの異常が未然に防止される。

【0016】そして、請求項5の発明は、請求項1ないし4のいずれにおいて、前記酸素量となるように吐出量が指令値に基づいて設定される酸素供給装置と、前記改質ガス中の一酸化炭素と酸素との酸化反応が生じるCO酸化部の圧力に関連する量に基づいて前記指令値を補正する指令値補正手段とを更に備えていることを特徴とするものである。

【0017】したがって請求項5の発明によれば、CO酸化部での酸素の供給圧に応じて酸素供給装置の指令値が補正されるので、CO酸化部の圧力が高い場合であっても必要量の酸素がCO酸化部に供給され、また反対にCO酸化部の圧力が低い場合には、指令値が低下されるので、酸素供給量が過剰になることがなく、結局、一酸化炭素の酸化のために供給される酸素量が適正化される。

#### 【0018】

【発明の実施の形態】つぎにこの発明を図に示す具体例に基づいて説明する。まず、改質器としてメタノールおよび水蒸気を改質燃料とした改質器を使用し、かつその改質器から生じた改質ガスを他の形態のエネルギーに変換するエネルギー変換器として燃料電池を使用したシステムについて説明する。図2はその一例を模式的に示しており、燃料電池1の燃料極側に、改質器2が接続されている。この改質器2は、改質燃料であるメタノールと水蒸気との混合物を水素を主成分とする改質ガスに改質するものであって、改質燃料を加熱する加熱部3と、改質部4と、CO酸化部5とを備えている。

【0019】加熱部3は、改質燃料を加熱してメタノールと水蒸気との混合蒸気を生じさせるためのものであり、加熱のための熱を発生させる燃焼部6とその熱によって改質燃料を蒸発させる蒸発部7とによって構成されている。その燃焼部6としては、加熱燃料をバーナによって燃焼させる構造のものや加熱燃料を触媒によって酸化させる構成のものなどを採用することができる。したがってこの燃焼部6には、加熱燃料の一例であるメタノールを供給するポンプ8がインジェクタ9を介して接続され、また支燃ガスの一例である空気を供給するエア供給部10が設けられている。このエア供給部10は具体的には、エアポンプによって構成されている。

【0020】また、蒸発部7には、メタノールと水との混合液を供給する改質燃料供給部としてポンプ11が接続されている。そしてこの蒸発部7と前記燃焼部6とは、熱交換器12によって熱伝達可能に連結されている。

【0021】前記改質部4は、主としてメタノールの改質反応によって水素を主成分とする改質ガスを発生させるように構成されている。その改質反応は、  

$$\text{CH}_3\text{OH} + \text{H}_2\text{O} \rightarrow 3\text{H}_2 + \text{CO}_2 + \alpha\text{CO} - 49.5 \text{ (kJ/mol)}$$

で示される水蒸気改質反応と、

$$\text{CH}_3\text{OH} + 1/2\text{O}_2 \rightarrow 2\text{H}_2 + \text{CO}_2 + 189.6 \text{ (kJ/mol)}$$

で示されるいわゆる部分酸化改質反応とであり、これらの反応を生じさせるために、活性温度が例えば280～300℃程度の銅系の触媒が用いられており、その触媒に対して前記蒸発部7からメタノールおよび水蒸気の混合蒸気が供給されるようになっている。また、その触媒

には、部分酸化反応のための酸素を供給するエアープンプ 13 が接続されている。

【0022】上記の水蒸気改質反応の式に示してあるように、実際の改質反応では、一酸化炭素が不可避免的に生じて改質ガスに混入する。この一酸化炭素は、燃料電池 1 における燃料極の触媒を被毒する原因となるので、これを除去するために CO 酸化部 5 が設けられている。この CO 酸化部 5 は、CO 酸化触媒（図示せず）を備えるとともに、エアール供給部 14 を備えており、改質部 4 で生成させた改質ガスを通過させることにより、改質ガスに含まれる一酸化炭素を空気中の酸素によって酸化させるように構成されている。

【0023】一方、燃料電池 1 は、一例として、プロトン透過性のある高分子膜を電解質とし、その電解質膜を挟んで燃料極（水素極）15 と空気極（酸素極）16 とを設け、このような構成の単電池を多数直並列に接続して構成されている。各電極 15、16 は、拡散層と反応層とによって構成され、燃料極 15 における反応層は、例えば炭素に白金やその合金あるいはルテニウムなどの触媒を担持させた多孔質構造とされている。そしてこの燃料極 15 に前記改質器 2 が連通され、ここに水素ガスを主体とする改質ガスが供給されるようになっている。また空気極 16 には、ポンプなどのエアール供給部 17 が接続され、改質ガス中の水素と反応させるための酸素を供給するようになっている。

【0024】なお、各電極 15、16 には、外部負荷としてバッテリー 18 やインバータ 19 が閉回路を構成するように接続されている。またこの閉回路には、電流センサー 20 が介装されている。さらにインバータ 19 には、モータ 21 が接続されている。このモータ 21 は、例えば車両の走行のための動力源とされる。

【0025】上記の燃料極 15 で生じる水素のイオン化および電解質膜を介した酸化反応は、燃料電池 1 に供給した水素ガスの全てについて生じる訳ではなく、その反応効率は、数十％であり、したがって燃料極 15 側から排ガスには未利用の可燃性ガスすなわち水素ガスが含まれている。これを有効利用するために、燃料極 15 側の排ガスを前記燃焼部 6 に戻すためにリターン管 22 が、燃料電池 1 と燃焼部 6 とを連通した状態に配置されている。またこのリターン管 22 の中間部には、その内部を流動するガスの流量を制御するための流量調整弁 23 が介装されている。なお、この流量値調整弁 23 はその開度を電氣的に制御するように構成されている。さらに、このリターン管 22 は、その内部を流動するガスを、燃焼部 6 に供給せずに適宜に外部に排出できるように構成されている。

【0026】さらに、CO 酸化部 5 について図 3 を参照して説明すると、所定の触媒（好ましくは一酸化炭素を選択的に酸化する触媒）からなる触媒層 30 がチャンバー 31 内に設けられており、そのチャンバー 31 の供給

口 32 に改質部 4 が接続されている。またその供給口 32 には、一酸化炭素を酸化させるための酸素（空気）を供給する CO 酸化エアール供給管 33 が接続されている。そしてこの CO 酸化エアール供給管 33 に、この発明における酸素供給装置であるエアールポンプを主体とするエアール供給部 14 が接続されている。さらに、チャンバー 31 の流出側には、この部分での一酸化炭素濃度（すなわち燃料電池 1 に供給される改質ガス中の一酸化炭素濃度）を検出して信号を出力する CO センサー 34 が設けられ、また供給口 32 の近傍には、この部分の圧力を検出して信号を出力する圧力センサー 35 が設けられている。そして触媒層 30 における供給口 32 側の部分には、温度を検出して信号を出力する温度センサー 36 が設けられている。

【0027】この CO 酸化部 5 に対する CO 酸化エアールの供給を制御するための電子制御装置（ECU）37 が設けられている。この電子制御装置 37 は、演算処理装置（CPU）と記憶装置（RAM、ROM）と入出力インターフェースとを主体とするいわゆるマイクロコンピュータであって、制御データとして改質燃料を蒸発部 7 に対して供給するポンプ 11 による供給量と、CO センサー 34 の出力信号（すなわち CO 濃度）と、圧力センサー 35 の出力信号（すなわち供給口での圧力）と、温度センサー 36 の出力信号（すなわち CO 酸化部 5 の温度）とが入力されている。そしてこれらの入力データを予め記憶しているプログラムに従って演算し、その結果をエアール供給部 14 に対して指令信号として出力するように構成されている。

【0028】上述した改質器 2 の基本的な動作について説明すると、改質燃料であるメタノールと水との混合液が、給液ポンプ 11 により蒸発部 7 に供給される。これに対して燃焼部 6 には、燃焼メタノールがインジェクタ 9 によって噴霧され、あるいはこれと同時にもしくはこれに替えて未利用水素ガスを含む排ガスがリターン管 22 から供給される。また支燃ガスとして空気がエアールポンプ 10 によって供給される。この燃焼メタノールおよび／または未利用水素ガスからなる加熱燃料と空気とが酸化触媒の下に酸化反応し、すなわち燃焼し、熱を発生する。その熱によって混合液が蒸発し、メタノールと水との混合蒸気が生じる。

【0029】蒸発部 7 で生じた混合蒸気は、改質部 4 に送られる。この改質部 4 に設けられた銅系触媒によってメタノールと水との水蒸気改質反応が生じ、水素ガスおよび二酸化炭素ガスを主成分とする改質ガスが生じる。またこれと同時に、エアールポンプ 13 から改質部 4 に供給された空気とメタノールとの部分酸化改質反応が生じる。この部分酸化改質反応は上述した式で表され、その結果、水素ガスと二酸化炭素ガスとが生じる。

【0030】メタノールの水蒸気改質反応は吸熱反応であり、これに対してメタノールの部分酸化改質反応は発

熱反応であるから、これらの反応における吸熱量と発熱量とが等しくなるように反応を制御することにより、改質部4での熱収支をバランスさせ、改質部4の温度がほぼ一定に維持される。したがって改質部4での熱の出入りがないので、前記燃焼部6で生じさせた熱は、専ら改質燃料の加熱・蒸発に使用される。

【0031】改質部4で生じるガスは、原理的には、水素ガスと二酸化炭素ガスであるが、実際には一酸化炭素ガスがわずかに(1%程度)生じる。この一酸化炭素ガスの大半は、改質ガスがCO酸化部5を通過する際にエア供給部14から供給される空気中の酸素と反応して二酸化炭素となる。こうして水素リッチなガスとされた改質ガスが燃料電池1における燃料極15に送られ、その反応層で水素イオンと電子とを生じるとともに、その水素イオンが電解質膜を透過して空気極16側で酸素と反応し、水を生じる。また電子は外部負荷を通過して動力を生じさせる。

【0032】上記のCO酸化部5において改質ガス中の一酸化炭素を過不足なく燃焼させるために、ここに供給する酸素量(具体的には空気量)が以下のように制御される。図1はその制御例を説明するためのフローチャートであって、改質燃料量に基づいてCO酸化エア量を算出する(ステップS1)。その改質燃料量 $F_k$  (mol/s)は、燃料電池1で必要とする水素ガス量に相当しているから、燃料電池1の負荷に基づいて算出される。

【0033】また、メタノールの改質によって生じる一酸化炭素の量は、前述した反応式で示したように、1モルのメタノールに対して $\alpha$ の割合である。これは、改質触媒の特性や改質条件などによって所定の値になるから、実験的に定めることができる。また、一酸化炭素の酸化に要する酸素は、1モルの一酸化炭素に対して1/2モルである。さらに、一酸化炭素の酸化反応の効率は、必ずしも100%ではないから、一酸化炭素の全量を酸化するためには、所定の過剰率をもって酸素を供給する必要がある。この過剰率は、一例として「5」前後の値であり、これも実験的に求めることができる。したがって改質ガス中の一酸化炭素を十分に酸化させて除去するために必要とする酸素量 $Q_{co1}$  (1/s)は、次式で求められる。

$$Q_{co1} (1/s) = \alpha \times F_k (mol/s) \times 1/2 \times 22.4 (1/mol) \times 100/21 \times 298/273 \times \text{過剰率}$$

ここで、「100/21」は必要酸素量の空気量換算であり、また「298/273」は室温を25℃とした場合の体積の補正である。

【0034】前記ポンプ11による改質燃料の供給から改質反応によって改質ガスが発生するまでには、改質燃料の輸送のための時間および蒸発部7と改質部4とでの動特性による遅れがあるため、これに基づく補正をおこなう(ステップS2)。まず、改質燃料の輸送に起因する遅れの補正は、遅れ時間を $t_0$ とすると、

$$Q_{co2} = Q_{co1}(t-t_0)$$

として補正する。すなわち、遅れ時間 $t_0$ だけ以前の時点のエア量として算出される値を現時点のCO酸化エア量として採用する。また、蒸発部7および改質部4での動特性を一次遅れと仮定すると、

$$Q_{co3}(1/s) = Q_{co3old} \times \tau / (DT + \tau) + Q_{co2} \times D T / (DT + \tau)$$

である。ここで、DTは制御周期であり、また $\tau$ は一次遅れの遅れの程度を表す量であり、さらに $Q_{co3old}$ は $Q_{co3}$ の一制御周期前の履歴である。

【0035】上述したCO酸化エア量は、改質燃料の量に基づいて算出した量であるが、改質部4における一酸化炭素の発生割合やCO酸化部5での一酸化炭素の酸化率は、必ずしも正確に一定値に安定しているわけではなく、僅かな変動があるので、これを是正する補正をおこなう(ステップS3)。すなわちCO酸化部5に設けた前記CO濃度センサー34で検出された一酸化炭素濃度 $D_{co}$  (ppm)が燃料電池1に対して供給される改質ガス中の目標一酸化炭素濃度 $D_{coref}$  (ppm)となるように供給酸素量を補正する。

【0036】その一例を示せば、

$$Q_{co4} (1/s) = Q_{co3} + K_p \times (D_{coref} - D_{co}) + K_i \times \Sigma (D_{coref} - D_{co})$$

である。ここで、 $K_p$  および  $K_i$  は制御パラメータであり、また $\Sigma (D_{coref} - D_{co})$ は目標濃度 $D_{coref}$ と検出された濃度 $D_{co}$ との偏差の積算値である。すなわち検出された一酸化炭素濃度が高い場合には、CO酸化エア量を増大させ、また反対に低い場合にはCO酸化エア量を減少させることにより、検出された一酸化炭素濃度が目標濃度となるようにCO酸化エア量を制御する。また、目標一酸化炭素濃度 $D_{coref}$ は、燃料電池1での電力の被毒の許容値であり、温度や圧力などの燃料電池1の運転条件から実験的に求められる。

【0037】周知のように一酸化炭素の酸化反応は発熱反応であるから、CO酸化部5で継続的かつ大量に一酸化炭素の酸化をおこなうと、触媒層30の温度が過剰に上昇し、その劣化を招来するおそれがある。そこで、触媒の劣化を未然に回避するために、CO酸化部5の温度に基づいてCO酸化エア量を補正する(ステップS4)。これは、例えば次式に示すように、既に算出されているCO酸化エア量に係数を掛けておこなうことができる。

$$Q_{co5} = K_{dec} \times Q_{co4}$$

この補正係数 $K_{dec}$ は、図4に示すよう、CO酸化部5の温度 $T_{co}$  (℃)の関数として定めておき、異常高温による触媒劣化のしきい値 $T_1$ を超えるに従って小さい値になるように設定されている。すなわち触媒温度がある程度高くなると、供給酸素量が低下させられて一酸化炭素の酸化が抑制され、触媒温度の上昇が防止される。

【0038】改質部4における改質反応量が増大する

と、ここからCO酸化部5に供給される改質ガス量が増大するので、CO酸化部5の供給口32での圧力が高くなる。改質ガス中の一酸化炭素を酸化させるための酸素は、その供給口32にエアールとして送り込むことにより供給されるから、その供給酸素量は供給口32での圧力によって影響される。すなわち供給口32での圧力が高い場合には、エアールの供給圧を高くする必要があり、また反対に供給口32での圧力が低い場合には、エアールの供給圧を低くすることができる。ステップS5ではこのような補正をおこなう。

【0039】すなわちエアール供給部14を構成しているエアールポンプの容量に応じてその指令値とエアール吐出量とに一定の関係がある。一般的には、これは比例関係である。これに対してエアールの供給箇所の圧力が高い場合には、それに応じて高い圧力でエアールを供給する必要があるため、エアールポンプの出力すなわちエアールポンプに対する指令値を大きくする必要がある。図5は、そのエアール吐出量とエアールポンプに対する指令値との関係を示した線図であり、エアールの供給箇所である前記供給口32での圧力が高いほど、エアールポンプに対する指令値（具体的には電圧）を高くする必要がある。ステップS5では、検出された供給口32の圧力に基づいて、図5に示す特性線を読み替え、算出された酸素供給量に応じた指令値を設定する。

【0040】なお、供給口32での圧力は、改質器2の出口での圧力と相関関係があるので、上述のように供給口32の圧力を直接検出する代わりに、供給口32の部分での圧力を、改質器2の出口圧力から推定し、その推定された圧力に基づいてエアール供給部14に対する指令値を補正するように構成してもよい。

【0041】上述したようにこの発明に係る制御装置によれば、改質燃料の量に基づいて一酸化炭素の酸化に供される酸素供給量を決定するので、改質ガスに含まれる一酸化炭素を過不足なく酸化させて改質ガスから除去することで、その結果、高品質の改質ガスを燃料電池1に供給することができる。特に上述した例では、改質燃料の輸送や反応の遅れに基づくエアール量の補正をおこなうので、CO酸化部5での一酸化炭素濃度と酸素量とが適合した状態になり、一酸化炭素の酸化およびそれに伴う濃度の低減を効果的におこなうことができる。

【0042】また、一酸化炭素の目標濃度に対する偏差に基づくエアール量の補正をおこなうので、改質ガス中の一酸化炭素濃度を、より正確に目標値に一致もしくは近似させることができる。さらに、CO酸化部の温度に基づくエアール量の補正をおこなうので、CO酸化部5の異常高温やそれに起因するCO酸化部5の損傷もしくは劣化を防止することができる。そして、CO酸化部5に対する供給圧に基づくエアール供給指令値の補正をおこなうので、算出された量の酸素をCO酸化部5に対して確実に供給し、改質ガス中の一酸化炭素濃度を効果的に低減

することができる。

【0043】ここでこの発明と上述した具体例との関係を説明すると、図1に示すステップS1の機能が請求項1のCO酸化用酸素供給量決定手段に相当し、またステップS2の機能が請求項2の応答遅れ基準補正手段に相当する。さらにステップS3の機能が請求項3における濃度基準補正手段に相当し、ステップS4の機能が請求項4における温度基準補正手段に相当する。そして、前記エアール供給部14が請求項5における酸素供給装置に相当し、かつステップS5の機能が請求項5における指令値補正手段に相当する。

【0044】なお、上述した例では、燃料電池1に燃料となるガスを供給するための改質器を対象とする装置にこの発明を適用した例を示したが、この発明は、以上述べた具体例に限定されないものであって、改質ガスを供給する装置は必要に応じて選択することができる。また、改質燃料としてメタノールを示したが、この発明の改質器は他の炭化水素を改質するように構成したものであってもよい。さらにこの発明では、一酸化炭素を酸化させるための酸素を供給する箇所の圧力は、要は、これに関連する状態量に基づいて検出もしくは推定すればよいのであって、上記の具体例で示した構成に限定されない。そしてこの発明では、一酸化炭素の濃度を低下させるための酸素は、空気として供給する代わりに、純粋な酸素の形で直接供給することとしてもよい。またさらに、上記の具体例では、図1に示すステップS2ないしステップS5のそれぞれで補正をおこなうように構成したが、この発明では、これら全ての補正を必要とする訳ではないであり、いずれかの補正を選択的におこなうこととしてもよい。したがってそれぞれの補正過程で対象とする値は、上記の具体例で示したものに限定されず、要は、補正過程の以前に得られている値を補正することとすればよい。

【0045】

【発明の効果】以上説明したように請求項1の発明によれば、改質反応に供される燃料の量と改質ガス中に含まれる一酸化炭素の量とに相関関係があることに着目し、改質反応に供される燃料の量の増減に応じて、一酸化炭素の酸化のために供給される酸素の量を増減するように構成したので、酸素の量が一酸化炭素の量に適合した量に設定され、その結果、改質ガス中の一酸化炭素を過不足なく酸化させてその濃度を低下させることができる。

【0046】また、請求項2の発明によれば、改質反応の応答遅れが、一酸化炭素の酸化のための酸素供給量に反映されるので、一酸化炭素と酸素との反応が生じる箇所での酸素濃度の過不足が是正され、その結果、改質ガス中の一酸化炭素の濃度を効果的に低減させることができる。

【0047】請求項3の発明によれば、改質ガス中の一酸化炭素の目標濃度が、酸素供給量に反映されるから、



一酸化炭素を酸化させて除去するために酸素の供給量がより正確になり、そのため、得られる改質ガスの品質を向上させることができる。

【0048】さらに、請求項4の発明によれば、一酸化炭素の酸化が生じるCO酸化部での温度を酸素の供給量に反映させることができ、したがって例えば一酸化炭素の酸化などによる温度上昇が過剰な場合には、酸素の供給量を制限することができるので、CO酸化部の熱劣化などの異常を未然に防止することができる。

【0049】そして、請求項5の発明によれば、CO酸化部での酸素の供給圧に応じて酸素供給装置の指令値が補正されるので、CO酸化部の圧力が高い場合であっても必要量の酸素がCO酸化部に供給され、また反対にCO酸化部の圧力が低い場合には、指令値が低下されるので、酸素供給量が過剰になることがなく、結局、一酸化炭素の酸化のために供給される酸素量を適正化して高品質の改質ガスを得ることができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】 この発明による制御装置で実行される制御例を説明するためのフローチャートである。

【図2】 改質器を燃料電池に接続したシステムの全体的な構成を模式的に示す図である。

【図3】 そのCO酸化部を模式的に示す図である。

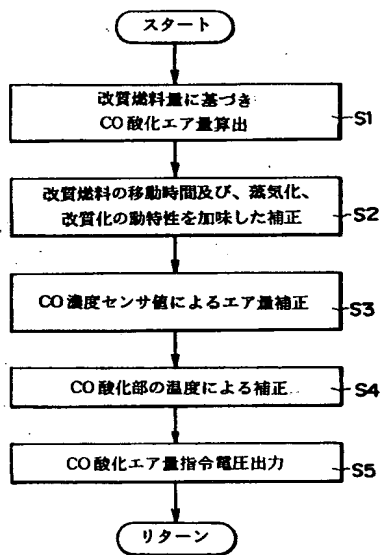
【図4】 温度によるCO酸化エア供給量の補正をおこなうための係数を決定するマップの例を示す図である。

【図5】 圧力をパラメータとしたCO酸化エア供給量とエアポンプ指令値との関係を示すマップの一例を示す図である。

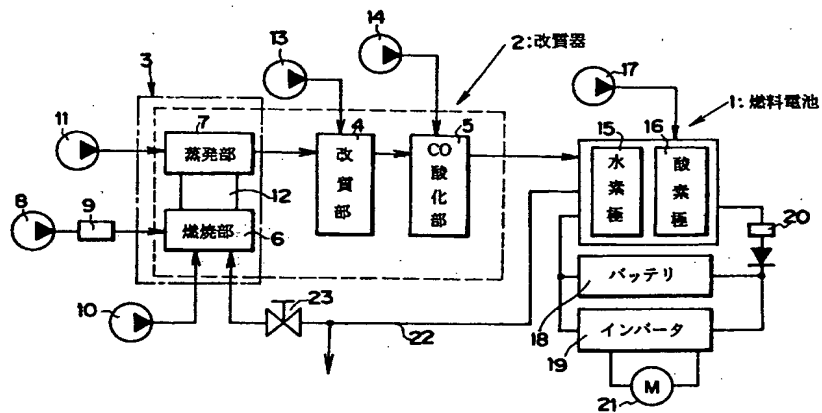
【符号の説明】

1…燃料電池、2…改質器、4…改質部、14…エア供給部、24…電子制御装置、30…触媒層、32…供給口、33…CO酸化エア供給管、34…COセンサー、35…圧力センサー、36…温度センサ。

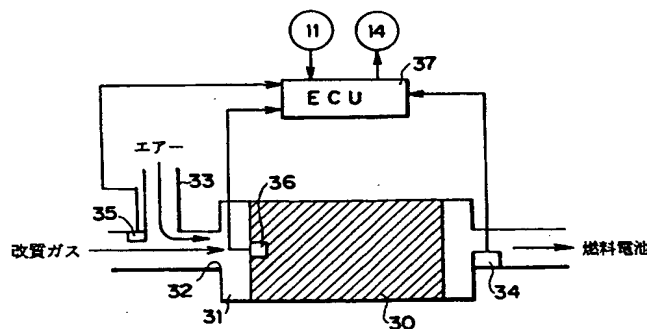
【図1】



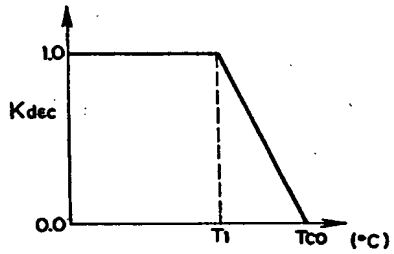
【図2】



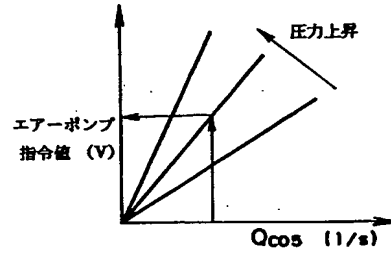
【図3】



【図4】



【図5】



フロントページの続き

(72)発明者 前田 岩夫  
愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内  
(72)発明者 山岡 正明  
愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

(72)発明者 滝 正佳  
愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内  
Fターム(参考) 4G040 FA04 FB04 FC06 FE03  
4H060 AA02 BB08 BB11 CC12 GG02  
5H027 AA06 BA01 BA09 BA16 DD03  
KK31 KK41 MM01

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☒ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**